

# Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/JP04/019354

International filing date: 24 December 2004 (24.12.2004)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: JP  
Number: 2003-431586  
Filing date: 25 December 2003 (25.12.2003)

Date of receipt at the International Bureau: 03 March 2005 (03.03.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b)



World Intellectual Property Organization (WIPO) - Geneva, Switzerland  
Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle (OMPI) - Genève, Suisse

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

07.01.2005

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日  
Date of Application: 2 0 0 3 年 1 2 月 2 5 日

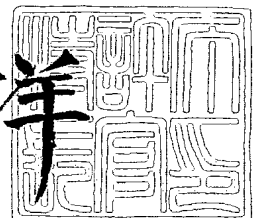
出 願 番 号  
Application Number: 特 願 2 0 0 3 - 4 3 1 5 8 6  
[ST. 10/C]: [ J P 2 0 0 3 - 4 3 1 5 8 6 ]

出 願 人  
Applicant(s): 三井金属鉱業株式会社

2 0 0 5 年 2 月 1 8 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

小 川 洋



【書類名】 特許願  
【整理番号】 M042003026  
【あて先】 特許庁長官殿  
【国際特許分類】 C04B 35/00  
C23C 14/08

【発明者】  
【住所又は居所】 埼玉県上尾市原市 1 3 3 3 - 2 三井金属鉱業株式会社 総合研  
究所内  
【氏名】 高橋 誠一郎

【発明者】  
【住所又は居所】 埼玉県上尾市原市 1 3 3 3 - 2 三井金属鉱業株式会社 総合研  
究所内  
【氏名】 渡辺 弘

【特許出願人】  
【識別番号】 000006183  
【氏名又は名称】 三井金属鉱業株式会社

【代理人】  
【識別番号】 100101236  
【弁理士】  
【氏名又は名称】 栗原 浩之

【手数料の表示】  
【予納台帳番号】 042309  
【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】  
【物件名】 特許請求の範囲 1  
【物件名】 明細書 1  
【物件名】 図面 1  
【物件名】 要約書 1  
【包括委任状番号】 0014484

**【書類名】 特許請求の範囲****【請求項 1】**

微粒子を製造する方法において、原料を液流、液滴又は粉末として、熱源中に供給し、生成物を霧状の液状流体により微粒子として捕獲し、気液分離により前記微粒子をスラリーとして回収することを特徴とする微粒子の製造方法。

**【請求項 2】**

請求項 1 において、原料の溶湯から液流又は液滴を形成して前記熱源中に供給することを特徴とする微粒子の製造方法。

**【請求項 3】**

請求項 1 において、原料のアトマイズ粉末を形成して前記熱源中に供給することを特徴とする微粒子の製造方法。

**【請求項 4】**

請求項 1 ～ 3 の何れかにおいて、前記気液分離をサイクロンを用いて行うことを特徴とする微粒子の製造方法。

**【請求項 5】**

請求項 1 ～ 4 の何れかにおいて、前記熱源が、アセチレン炎又は DC プラズマ炎であることを特徴とする微粒子の製造方法。

**【請求項 6】**

請求項 1 ～ 5 の何れかにおいて、前記液状流体が、水であることを特徴とする微粒子の製造方法。

**【請求項 7】**

請求項 1 ～ 6 の何れかにおいて、前記原料が、金属、合金、酸化物、窒化物及び酸窒化物から選択される少なくとも一種であることを特徴とする微粒子の製造方法。

**【請求項 8】**

請求項 1 ～ 7 の何れかにおいて、前記熱源が、酸化雰囲気気又は窒化雰囲気気の何れかであり、酸化物、窒化物及び酸窒化物の何れかの微粒子を得ることを特徴とする微粒子の製造方法。

**【請求項 9】**

請求項 1 ～ 7 の何れかにおいて、前記原料が、In-Sn 合金又はITO 粉末であり、酸化インジウム-酸化錫粉末を製造することを特徴とする微粒子の製造方法。

**【請求項 10】**

請求項 9 において、錫含有量が  $\text{SnO}_2$  換算で 2.3 ～ 4.5 質量% である酸化インジウム-酸化錫粉末を製造することを特徴とする微粒子の製造方法。

**【請求項 11】**

請求項 1 ～ 10 の何れかにおいて、前記生成物の前記液状流体により捕獲する際の最大速度が、150 m/sec 以下であることを特徴とする微粒子の製造方法。

**【請求項 12】**

熱源中に原料を液流、液滴又は粉末として供給することにより得られる生成物を気体流体と共に導入する導入口と、導入された生成物に対して霧状の液状流体を噴射する流体噴射手段と、液状流体で捕獲された微粒子を気液分離して前記微粒子のスラリーを得る気液分離手段と、液状流体で捕獲できなかった微粒子を含む雰囲気流体の一部を流体滴噴射位置まで戻して循環させる循環手段とを具備することを特徴とする微粒子の製造装置。

**【請求項 13】**

請求項 12 において、前記気液分離手段の下流側にさらに、液状流体で捕獲できなかった微粒子を含む雰囲気流体の一部を導入すると共に霧状の液状流体を噴射し気液分離して前記微粒子のスラリーを得る第 2 の気液分離手段を具備することを特徴とする微粒子の製造装置。

**【請求項 14】**

請求項 13 において、前記気液分離手段の下流側にさらに、液状流体で捕獲できなかった微粒子を含む雰囲気流体の一部を前記第 2 の気液分離手段の導入部まで戻す第 2 の循環手

段を具備することを特徴とする微粒子の製造装置。

【請求項 15】

請求項 12～14 の何れかにおいて、前記気液分離手段がサイクロンであることを特徴とする微粒子の製造装置。

【請求項 16】

請求項 12～15 の何れかにおいて、前記流体噴射手段が噴射した液状流体に微粒子が捕獲される際の最大速度が  $150 \text{ m/sec}$  以下であることを特徴とする微粒子の製造装置。

【書類名】 明細書

【発明の名称】 微粒子の製造方法及び製造装置

【技術分野】

【0 0 0 1】

本発明は、酸化インジウム－酸化錫粉末などの微粒子の製造方法及び製造装置に関する。

【背景技術】

【0 0 0 2】

一般的に、薄膜を成膜する方法の1つとしてスパッタリング法が知られている。スパッタリング法とは、スパッタリングターゲットをスパッタリングすることにより薄膜を得る方法であり、大面積化が容易であり、高性能の膜が効率よく成膜できるため、工業的に利用されている。また、近年、スパッタリングの方式として、反応性ガスの中でスパッタリングを行う反応性スパッタリング法や、ターゲットの裏面に磁石を設置して薄膜形成の高速化を図るマグネトロンスパッタリング法なども知られている。

【0 0 0 3】

このようなスパッタリング法で用いられる薄膜のうち、特に、酸化インジウム－酸化錫 ( $\text{In}_2\text{O}_3 - \text{SnO}_2$  の複合酸化物、以下、「ITO」という) 膜は、可視光透過性が高く、かつ導電性が高いので透明導電膜として液晶表示装置やガラスの結露防止用発熱膜、赤外線反射膜等に幅広く用いられている。

【0 0 0 4】

このため、より効率よく低コストで成膜するために、現在においてもスパッタ条件やスパッタ装置などの改良が日々行われており、装置を如何に効率的に稼働させるかが重要となる。また、このようなITOスパッタリングにおいては、新しいスパッタリングターゲットをセットしてから初期アーク（異常放電）がなくなって製品を製造できるまでの時間が短いことと、一度セットしてからどれくらいの期間使用できるか（積算スパッタリング時間：ターゲットライフ）が問題となる。

【0 0 0 5】

このようなITOスパッタリングターゲットは、酸化インジウム粉末及び酸化錫粉末を所定の割合で混合して乾式又は湿式で成形し、焼結したものであり（特許文献1）、高密度のITO焼結体を得るための高分散性の酸化インジウム粉末が提案されている（特許文献2，3，4等参照）。

【0 0 0 6】

また、共沈法により湿式合成されたITO粉末をITO焼結体とすることも知られており（特許文献5等参照）、同様に高密度な焼結体を得るためのITO粉末の湿式合成方法が多数提案されている（特許文献6～9等参照）。

【0 0 0 7】

さらに、プラズマアーク中でインジウム－錫合金と酸素とを反応させて、マッハ1以上のガス流で所定の冷却速度以上で冷却することによりITO粉末を製造する方法が提案されている（特許文献10参照）。しかしながら、マッハ1以上の高速ガス流を用いるなど、設備が大がかりになり、安価に効率よくITO粉末を製造することができないという問題がある。

【0 0 0 8】

一方、ITO粉末の製造方法ではないが、金属酸化物微粒子の製造方法としては、以下の方法が提案されている。例えば、金属粉末をバーナ火炎中に供給し、酸化物超微粒子を製造し、固気相分離する各種方法が提案されている（特許文献11～16等参照）。また、熔融金属に気体を噴射して粉体化し、気体で搬送される粉体を液体中に導入して化学反応および濃縮等の反応を起こさせて微粉体を製造する方法が提案されている（特許文献17参照）。さらに、金属バルク又は金属酸化物棒などの原料体にプラズマアークをあてて原料体を熔融蒸発させ、この蒸発ガスに反応・冷却ガスを吹き付けて超微粒子を形成する方法が提案されている（特許文献18～20参照）。

## 【0009】

しかしながら、このような乾式合成は、ITO粉末に適さないためか、現在、ITO粉末の乾式合成は工業的に行われていない。

## 【0010】

- 【特許文献1】特開昭62-21751号公報
- 【特許文献2】特開平5-193939号公報
- 【特許文献3】特開平6-191846号公報
- 【特許文献4】特開2001-261336号公報
- 【特許文献5】特開昭62-21751号公報
- 【特許文献6】特開平9-221322号公報
- 【特許文献7】特開2000-281337号公報
- 【特許文献8】特開2001-172018号公報
- 【特許文献9】特開2002-68744号公報
- 【特許文献10】特開平11-11946号公報
- 【特許文献11】特公平1-55201号公報
- 【特許文献12】特公平5-77601号公報
- 【特許文献13】特許第3253338号公報
- 【特許文献14】特許第3253339号公報
- 【特許文献15】特許第3229353号公報
- 【特許文献16】特許第3225073号公報
- 【特許文献17】特開昭60-71037号公報
- 【特許文献18】特開2002-253953号公報
- 【特許文献19】特開2002-253954号公報
- 【特許文献20】特開2002-263474号公報

## 【発明の開示】

## 【発明が解決しようとする課題】

## 【0011】

本発明はこのような事情に鑑み、酸化物微粒子等の微粒子をより簡便な装置で且つ低コストで製造でき、ITO粉末の製造に好適な微粒子の製造方法及び製造装置を提供することを課題とする。

## 【課題を解決するための手段】

## 【0012】

前記課題を解決する本発明の第1の態様は、微粒子を製造する方法において、原料を液流、液滴又は粉末として、熱源中に供給し、生成物を霧状の液状流体により微粒子として捕獲し、気液分離により前記微粒子をスラリーとして回収することを特徴とする微粒子の製造方法にある。

## 【0013】

かかる第1の態様では、原料が熱源中に供給されて得られた生成物は、霧状の液状流体により微粒子として捕獲されて気液分離により効率的に回収される。

## 【0014】

本発明の第2の態様は、第1の態様において、原料の溶湯から液流又は液滴を形成して前記熱源中に供給することを特徴とする微粒子の製造方法にある。

## 【0015】

かかる第2の態様では、原料としての金属若しくは合金などの溶湯からの液流又は液滴は熱源中で場合によっては酸化物となり、霧状の液状流体により微粒子として捕獲される。

## 【0016】

本発明の第3の態様は、第1の態様において、原料のアトマイズ粉末を形成して前記熱源中に供給することを特徴とする微粒子の製造方法にある。

## 【0017】

かかる第 3 の態様では、原料の金属若しくは合金などはアトマイズ粉末として熱源中に供給され、微粒子とされる。

【0 0 1 8】

本発明の第 4 の態様は、第 1 ～ 3 の何れかの態様において、前記気液分離をサイクロンを用いて行うことを特徴とする微粒子の製造方法にある。

【0 0 1 9】

かかる第 4 の態様では、サイクロンにより気液分離されて微粒子が液状流体のスラリーとして回収される。

【0 0 2 0】

本発明の第 5 の態様は、第 1 ～ 4 の何れかの態様において、前記熱源が、アセチレン炎又は DC プラズマ炎であることを特徴とする微粒子の製造方法にある。

【0 0 2 1】

かかる第 5 の態様では、原料は、アセチレン炎又は DC プラズマ炎により微粒子とされる。

【0 0 2 2】

本発明の第 6 の態様は、第 1 ～ 5 の何れかの態様において、前記液状流体が、水であることを特徴とする微粒子の製造方法にある。

【0 0 2 3】

かかる第 6 の態様では、生成物は水により捕獲され、スラリーとして回収される。

【0 0 2 4】

本発明の第 7 の態様は、第 1 ～ 6 の何れかの態様において、前記原料が、金属、合金、酸化物、窒化物及び酸窒化物から選択される少なくとも一種であることを特徴とする微粒子の製造方法にある。

【0 0 2 5】

かかる第 7 の態様では、金属、合金、酸化物、窒化物及び酸窒化物などの原料は、微粒子とされる。

【0 0 2 6】

本発明の第 8 の態様は、第 1 ～ 7 の何れかの態様において、前記熱源が、酸化雰囲気又は窒化雰囲気の何れかであり、酸化物、窒化物及び酸窒化物の何れかの微粒子を得ることを特徴とする微粒子の製造方法にある。

【0 0 2 7】

かかる第 8 の態様では、原料は、酸化雰囲気又は窒化雰囲気下の熱源中で、酸化物、窒化物又は酸窒化物の微粒子とされる。

【0 0 2 8】

本発明の第 9 の態様は、第 1 ～ 7 の何れかの態様において、前記原料が、In-Sn 合金又は ITO 粉末であり、酸化インジウム-酸化錫粉末を製造することを特徴とする微粒子の製造方法にある。

【0 0 2 9】

かかる第 9 の態様では、In-Sn 合金又は ITO 粉末から ITO 粉末がスラリーとして製造される。

【0 0 3 0】

本発明の第 10 の態様は、第 9 の態様において、錫含有量が  $\text{SnO}_2$  換算で 2.3 ～ 4.5 質量%である酸化インジウム-酸化錫粉末を製造することを特徴とする微粒子の製造方法にある。

【0 0 3 1】

かかる第 10 の態様では、所定量の酸化錫により ITO の導電性が保持される。

【0 0 3 2】

本発明の第 11 の態様は、第 1 ～ 10 の何れかの態様において、前記生成物の前記液状流体により捕獲する際の最大速度が、 $150 \text{ m/s}$  以下であることを特徴とする微粒子の製造方法にある。



## 【 0 0 3 3 】

かかる第 1 1 の態様では、比較的低速の流速で微粒子を製造することができる。

## 【 0 0 3 4 】

本発明の第 1 2 の態様は、熱源中に原料を液流、液滴又は粉末として供給することにより得られる生成物を気体流体と共に導入する導入口と、導入された生成物に対して霧状の液状流体を噴射する流体噴射手段と、液状流体で捕獲された微粒子を気液分離して前記微粒子のスラリーを得る気液分離手段と、液状流体で捕獲できなかった微粒子を含む雰囲気流体の一部を流体滴噴射位置まで戻して循環させる循環手段とを具備することを特徴とする微粒子の製造装置にある。

## 【 0 0 3 5 】

かかる第 1 2 の態様では、原料が熱源中に供給されて得られた生成物は、霧状の液状流体により微粒子として捕獲されて気液分離され、雰囲気流体の少なくとも一部は循環手段により循環されて再度気液分離されることにより効率的に回収される。

## 【 0 0 3 6 】

本発明の第 1 3 の態様は、第 1 2 の態様において、前記気液分離手段の下流側にさらに、液状流体で捕獲できなかった微粒子を含む雰囲気流体の一部を導入すると共に霧状の液状流体を噴射し気液分離して前記微粒子のスラリーを得る第 2 の気液分離手段を具備することを特徴とする微粒子の製造装置にある。

## 【 0 0 3 7 】

かかる第 1 3 の態様では、第 2 の気液分離手段により、回収できなかった微粒子が効率的に回収される。

## 【 0 0 3 8 】

本発明の第 1 4 の態様は、第 1 3 の態様において、前記気液分離手段の下流側にさらに、液状流体で捕獲できなかった微粒子を含む雰囲気流体の一部を前記第 2 の気液分離手段の導入部まで戻す第 2 の循環手段を具備することを特徴とする微粒子の製造装置にある。

## 【 0 0 3 9 】

かかる第 1 4 の態様では、第 2 の気液分離手段でスラリーとして回収できなかった雰囲気ガスが再度気液分離され、微粒子が効率的に回収される。

## 【 0 0 4 0 】

本発明の第 1 5 の態様は、第 1 2 ～ 1 4 の何れかの態様において、前記気液分離手段がサイクロンであることを特徴とする微粒子の製造装置にある。

## 【 0 0 4 1 】

かかる第 1 5 の態様では、サイクロンにより気液分離を連続的且つ効率的に行うことができる。

## 【 0 0 4 2 】

本発明の第 1 6 の態様は、第 1 2 ～ 1 5 の何れかの態様において、前記流体噴射手段が噴射した液状流体に微粒子が捕獲される際の最大速度が  $150\text{ m/sec}$  以下であることを特徴とする微粒子の製造装置にある。

## 【 0 0 4 3 】

かかる第 1 6 の態様では、比較的低速の流速で微粒子を製造することができる。

## 【発明の効果】

## 【 0 0 4 4 】

以上説明したように、本発明によれば、熱源中に原料金属若しくは合金を液流、液滴又は粉末として導入することにより得られた生成物を霧状の液状流体で捕獲することにより、微粒子を効率よく簡便に製造することができるという効果を奏する。

## 【発明を実施するための最良の形態】

## 【 0 0 4 5 】

本発明の微粒子を製造する方法では、原料を、液流、液滴又は粉末として、熱源中に供給する。

## 【 0 0 4 6 】

ここで、原料は、例えば、金属若しくは合金であり、金属若しくは合金としては、例えば、Mg、Al、Zr、Fe、Si、In、Snなどの金属、又はこれらの合金である。また、原料として、上述した金属若しくは合金などの酸化物、窒化物及び酸窒化物を用いることができる。なお、ここで、酸化物は、複合酸化物を含むものであり、窒化物は複合窒化物を含むものである。

【0047】

かかる原料は、溶融した状態の液流又は液滴として供給してもよいし、粉末状態として供給してもよい。すなわち、溶湯溜などから連続的に液流として若しくは液滴として滴下してもよく、又はアトマイズ粉末を形成してこれを供給するようにしてもよい。

【0048】

例えば、In-Sn合金を原料とすると、ITO粉末を得ることができる。また、ITO粉末を原料としても、性状の異なるITO粉末を得ることができる。

【0049】

また、熱源としては、酸化雰囲気又は窒化雰囲気可能な熱源を挙げることができ、例えば、アセチレン炎、DCプラズマ炎などを挙げることができる。熱源の温度は、金属若しくは合金又は酸化物や窒化物あるいは酸窒化物を溶融し、十分に酸化若しくは窒化できる程度であればよく、特に制限されない。なお、アセチレン炎の場合には、数千℃以上、DCプラズマ炎の場合には、数万℃以上であるといわれている。

【0050】

このようなアセチレン炎又はDCプラズマ炎に原料を液流、液滴又は粉末として供給すると、生成物は、そのまま又は酸化物や窒化物あるいは酸窒化物として気体流と共に得られる。原料をそのまま金属若しくは合金の生成物として得るか、又は金属若しくは合金の酸化物や窒化物あるいは酸窒化物とするかは熱源の火炎の状態によって決定され、酸化雰囲気とすると、金属若しくは合金の酸化物あるいは酸窒化物の生成物が得られ、窒化雰囲気とすると、金属若しくは合金の窒化物や酸窒化物が得られる。また、原料として、酸化物や窒化物あるいは酸窒化物を用いても、性状の異なる酸化物や窒化物あるいは酸窒化物を得ることができる。

【0051】

本発明では、得られた生成物を霧状の液状流体により捕獲する。すなわち、アセチレン炎やDCプラズマ炎の噴流と共に流れる生成物に霧状の液状流体、好ましくは霧状の水を噴霧する。これにより、生成物は急冷されて微粒子となり、噴霧された液状流体のスラリーとなる。

【0052】

ここで、霧状の液状流体の供給は、得られる生成物を捕獲して冷却できるように行えばよく、特に限定されない。例えば、水を用いる場合には、常温の水、好ましくは、常温の純水を用いればよいが、冷却水を用いてもよい。

【0053】

生成物を微粒子として捕獲する場合、捕獲する際の最大速度は、例えば、150 m/sec以下、好ましくは100 m/sec以下程度である。

【0054】

本発明では、噴霧された液状流体に捕獲された微粒子を含む液状流体を気液分離し、微粒子をスラリーとして回収する。ここで、スラリーの回収方法は特に限定されないが、好ましくは、サイクロンを用いて行うことができる。

【0055】

本発明方法を用いると、原料としてIn-Sn合金若しくはITO粉末を用いることにより、酸化インジウム-酸化錫（ITO）粉末を製造することができる。このように製造されたITO粉末は、このようにIn<sub>2</sub>O<sub>3</sub>中のSnO<sub>2</sub>固容量が高水準なので、焼結性が高く、比較的容易に高密度の焼結体を得られ、この結果、ライフの長いターゲットを得ることができる。なお、各種製造方法により製造されたITO粉末、又は焼結されたITO焼結体を粉砕したITO粉末を原料とした場合、原料とは異なる性状で、In<sub>2</sub>O<sub>3</sub>中

の  $\text{SnO}_2$  固溶量が高水準な ITO 粉末を得ることができる。

【0056】

なお、かかる ITO 粉末は、ITO スパッタリングターゲットの材料として用いることができる。かかる ITO スパッタリングターゲットの材料としては、錫含有量が  $\text{SnO}_2$  換算で 2.3 ~ 4.5 質量%であるのが好ましい。

【実施例】

【0057】

以下、本発明方法を実施する微粒子の製造装置の一例を図 1 を参照しながら説明する。

【0058】

この装置は、酸化雰囲気又は窒化雰囲気可能な熱源であるアセチレン炎又は DC プラズマ炎からなる火炎 1 中に供給された金属若しくは合金などの原料 2 を液流、液滴又は粉末として供給することにより得られる生成物 3 を気体流体と共に導入する導入口 10 と、導入された微粒子に対して霧状の液状流体を噴射する流体噴射手段 20 と、液状流体で捕獲された微粒子を気液分離して前記微粒子のスラリーを得る気液分離手段であるサイクロン 30 と、液状流体で捕獲できなかった微粒子を含む雰囲気流体の一部を流体滴噴射位置まで戻して循環させる循環手段 40 とを具備する。

【0059】

ここで、導入口 10 は、生成物を含む気体流を導入できるものであれば特に限定されないが、気体流を吸引するようにしてもよい。

【0060】

流体噴射手段 20 は、導入口 10 が設けられた導入管 11 の下流側に設けられて流体、例えば、水を噴射する複数の噴射ノズル 21 と、噴射ノズル 21 へ流体を導入するためにポンプ 22 及び流体を湛える流体タンク 23 とを有する。噴射ノズル 21 からの流体の噴射の方向は特に限定されないが、導入口 10 から導入される気体流の流れ方向に向かって合流する方向に噴射するのがよい。導入口 10 から導入された気体流に含有される生成物 3 は、噴霧された流体、例えば、水により冷却され、微粒子として捕獲される。なお、導入管 11 の噴射ノズル 21 の下流側には、流路を絞ったベンチュリー部 12 を設けて気液混合物の流速の低下を防止しているが、ベンチュリー部 12 は必ずしも設ける必要はない。また、噴射ノズル 21 及びポンプ 22 は、必ずしも設ける必要はなく、気体流の流れによる吸引力により液体を吸引して噴射するようにしてもよい。

【0061】

導入口 10 が設けられた導入管 11 は、気液分離手段であるサイクロン 30 の導入口 31 に連通している。サイクロン 30 の導入口 31 から導入された気液混合物は、サイクロン本体 32 の内壁に沿って周回する渦流 33 となって気液分離され、液体成分、すなわち、微粒子を含むスラリーが下部に落下し、気体成分は排気口 34 から排出されるようになっている。

【0062】

本実施形態では、排気口 34 に循環手段 40 が設けられている。すなわち、排気口 34 には、導入管 11 の導入口 10 近傍に連通する循環パイプ 41 が設けられ、循環パイプ 41 の途中にブローア 42 が介装されており、これらが循環手段 40 を構成している。この循環手段 40 により、捕獲しきれなかった粉末を噴射ノズル 21 の上流側に戻し、捕獲効率を向上させている。

【0063】

また、サイクロン 30 で気液分離された液体成分は水排出口 36 から排出され、流体タンク 23 に湛えられる。なお、この流体タンク 23 に湛えられたスラリーの上澄みの水が循環手段 40 により循環されているので、徐々に微粒子成分の濃度の濃いスラリーが得られる。

【0064】

サイクロン 30 からの排気の大部分は排気口 34 から循環パイプ 41 に循環されるが、排気の一部、例えば、十分の一程度は第 2 の排気口 35 から排気されるようになっている。

## 【0065】

本実施形態では、第2の排気口35には、第2の気液分離手段である第2のサイクロン50が排気パイプ43を介して接続されている。第2のサイクロン50は、基本的にはサイクロン30と同一の構造を有して気液分離作用を有する。すなわち、排気パイプ43が接続される導入口51から導入された気液混合物は、サイクロン本体52の内壁に沿って周回する渦流53となって気液分離され、液体成分、すなわち、微粒子を含むスラリーは、下部に落下し、水排出口54から排出され、流体タンク61に溜まるようになっている。さらに詳言すると、排気パイプ43の途中には流路を絞ったベンチュリー部44が設けられており、このベンチュリー部44と、流体タンク61とを連通する水循環パイプ62が設けられている。これにより、ベンチュリー部44の高速の気体の流れにより、流体タンク61中の水が吸引されてベンチュリー部44内に噴射され、気体中に残存する微粒子を液体中に捕獲するようにしている。一方、排気口55には排気パイプ71が連結され、排気パイプ71には第2のブロー72が設けられ、当該第2のブロー72を介して排気口55からの気体が排気されるようになっている。なお、水タンク61の水を排気パイプ43内に噴霧するには、上述したサイクロン30のように、ポンプと噴霧ノズルを用いて行ってもよい。また、流体タンク61には、上述したように、フィルターを設けてもよいし、中和して微粒子を分離する沈降分離槽を設けてもよい。さらに、排気口55からの排気の一部を排気パイプ43のベンチュリー部44の上流側に循環させるようにして、さらに捕獲効率を高めてもよい。

## 【0066】

なお、サイクロン30のみで微粒子の捕獲効率が十分な場合には、第2のサイクロン50は、必ずしも設ける必要はなく、又は、さらに捕獲効率を高めたい場合には、さらに複数のサイクロンを連結してもよい。

## 【0067】

以上説明した実施形態の装置を用いて微粒子を製造した例を以下に示す。

## 【0068】

## (実施例1)

In-Sn合金(Sn9.6wt%)のアトマイズ粉末(平均粒径 $45\mu\text{m}$ )を、アセチレン炎に導入してITO( $\text{In}_2\text{O}_3:\text{SnO}_2=90:10\text{wt}\%$ )粉末を乾式合成し、これをバグフィルターにより乾式回収し、実施例1のITO粉末とした。

## 【0069】

## (実施例2)

実施例1と同様にしてアセチレン炎より乾式合成したITO粉末を、スプレー水により湿式回収し、これを実施例2のITO粉末とした。

## 【0070】

## (比較例1)

湿式合成された酸化インジウム粉末を $1000^\circ\text{C}$ で仮焼した酸化インジウム粉末90質量%と、同様に湿式合成された酸化錫を $1000^\circ\text{C}$ で仮焼した酸化錫粉末10質量%とを乳鉢で混合したものを比較例1とし、標準品とした。

## 【0071】

## (比較例2)

共沈法により湿式合成されたITO粉末を比較例2のITO粉末とした。

## 【0072】

共沈法による湿式合成の手順は以下の通りである。すなわち、まず、In(4N)20gを硝酸(試薬特級:濃度60~61%)133ccに常温にて溶解し( $\text{pH}=-1.5$ )、一方、Sn(4N)2.12gを塩酸(試薬特級:濃度35~36%)100ccに常温にて溶解し( $\text{pH}=-1.9$ )、両者を混合して混酸溶液とした。このとき、析出物はなく、 $\text{pH}$ は-1.5であった。次いで、この混酸に25%アンモニア水(試薬特級)を混合して中和して $\text{pH}6.5$ としたところ、白い沈殿物を析出した。数時間後、上水を

捨てて純水 2 リットル (L) にて 3 回洗浄した後、8 0 °C にて乾燥させた後、6 0 0 °C で 3 時間培焼、脱水反応させ、湿式合成 I T O 粉末を得た。

### 【0 0 7 3】

#### (比較例 3)

湿式合成された酸化インジウム粉末と酸化錫粉末との混合物 (酸化錫 1 0 w t %) の粉末を用いて 1 5 5 0 °C 以上で焼結した焼結体を粉碎したものを比較例 3 の I T O 粉末とした。

### 【0 0 7 4】

#### (試験例 1)

各実施例及び各比較例の I T O 粉末について、S n O<sub>2</sub> 固溶量を求めた。手順は以下の通りである。なお、試験の実施に先駆けて、実施例 1, 2 及び比較例 2, 3 の I T O 粉末については、1 0 0 0 °C × 3 時間、大気中で仮焼して、微小粒子として析出している S n O<sub>2</sub> を成長させて S n O<sub>2</sub> として検出され易いようにした。

1. まず、誘導結合高周波プラズマ分光分析 (I C P 分光分析) した。この結果より、I n、S n 以外は全て酸素 O であるとし、その O の量は欠損している可能性があるとして、I n と S n との比を求め、この I n 及び S n の全てが I n<sub>2</sub> O<sub>3</sub>、S n O<sub>2</sub> になったとしたときの重量比を算出した。

2. 各実施例及び各比較例の I T O 粉末について、粉末 X 線回折 (X R D) による分析を行い、S n O<sub>2</sub> 析出量を求めた。すなわち、回折結果から、間化合物 (I n<sub>2</sub> S n<sub>3</sub> O<sub>12</sub>) の有無を確認し、間化合物が検出されない場合には、比較例 1 を標準として各試料の I n<sub>2</sub> O<sub>3</sub> (2 2 2) 積分回折強度及び S n O<sub>2</sub> (1 1 0) 積分回折強度の比から S n O<sub>2</sub> の析出量 (質量%) を求めた。すなわち、S n O<sub>2</sub> の析出量 (質量%) は、X 線回折の積分回折強度比から求められる S n O<sub>2</sub> の含有量であり、I n<sub>2</sub> O<sub>3</sub> に固溶していない S n O<sub>2</sub> が 1 0 0 0 °C 程度の仮焼により成長して X 線回折の S n O<sub>2</sub> (1 1 0) のピークとなると仮定している。X 線回折の結果を図 2 ~ 図 6 に示す。

3. 1 及び 2 の結果から、I C P 分析で検出されたが、X 線回折では S n O<sub>2</sub> (1 1 0) とは検出されない S n O<sub>2</sub> を、I n<sub>2</sub> O<sub>3</sub> 中の S n O<sub>2</sub> 固溶量とした。

これらの結果を表 1 に示す。

### 【0 0 7 5】

この結果、実施例 1, 2 の I T O 粉末では、S n O<sub>2</sub> 固溶量が 2. 3 5 w t %、2. 4 2 w t % と、湿式合成した I T O 粉末である比較例 2 の 2. 2 6 w t % より多いことがわかった。なお、一度焼結体としたものを粉碎した比較例 3 の I T O 粉末では間化合物が検出され、S n O<sub>2</sub> 固溶量は測定不能であった。

### 【0 0 7 6】

【表 1】

| 試料<br>番号  | I C P の結果    |              |  |                             | X R D の結果 |                             |                             |                                    | S n O <sub>2</sub><br>固溶量<br>(wt%) |
|-----------|--------------|--------------|--|-----------------------------|-----------|-----------------------------|-----------------------------|------------------------------------|------------------------------------|
|           | I n<br>(wt%) | S n<br>(wt%) | I n <sub>2</sub> O <sub>3</sub><br>(wt%) | S n O <sub>2</sub><br>(wt%) | 間化<br>合物  | I n O <sub>3</sub><br>(222) | S n O <sub>2</sub><br>(110) | S n O <sub>2</sub><br>析出量<br>(wt%) |                                    |
| 実施<br>例 1 | 74.1         | 8.26         | 89.52                                    | 10.48                       | 無         | 6974596                     | 357821                      | 8.13                               | 2.35                               |
| 実施<br>例 2 | 74.8         | 7.90         | 89.92                                    | 10.08                       | 無         | 6875331                     | 331124                      | 7.66                               | 2.42                               |
| 比較<br>例 1 | 75.1         | 7.87         | 90.09                                    | 9.91                        | 無         | 7141621                     | 455777                      | 9.91<br>標準                         | 0.00                               |
| 比較<br>例 2 | 76.1         | 8.03         | 90.03                                    | 9.97                        | 無         | 7273411                     | 352429                      | 7.71                               | 2.26                               |
| 比較<br>例 3 | 74.8         | 7.90         | 90.02                                    | 9.98                        | 有         | 7529677                     | 105639                      | -                                  | -                                  |

## 【図面の簡単な説明】

【 0 0 7 7 】

【図 1】 本発明の一実施形態に係る微粒子の製造装置の概略構成図である。

【図 2】 本発明の実施例 1 の I T O 粉末の X 線回折の結果を示す図である。

【図 3】 本発明の実施例 2 の I T O 粉末の X 線回折の結果を示す図である。

【図 4】 本発明の比較例 1 の I T O 粉末の X 線回折の結果を示す図である。

【図 5】 本発明の比較例 2 の I T O 粉末の X 線回折の結果を示す図である。

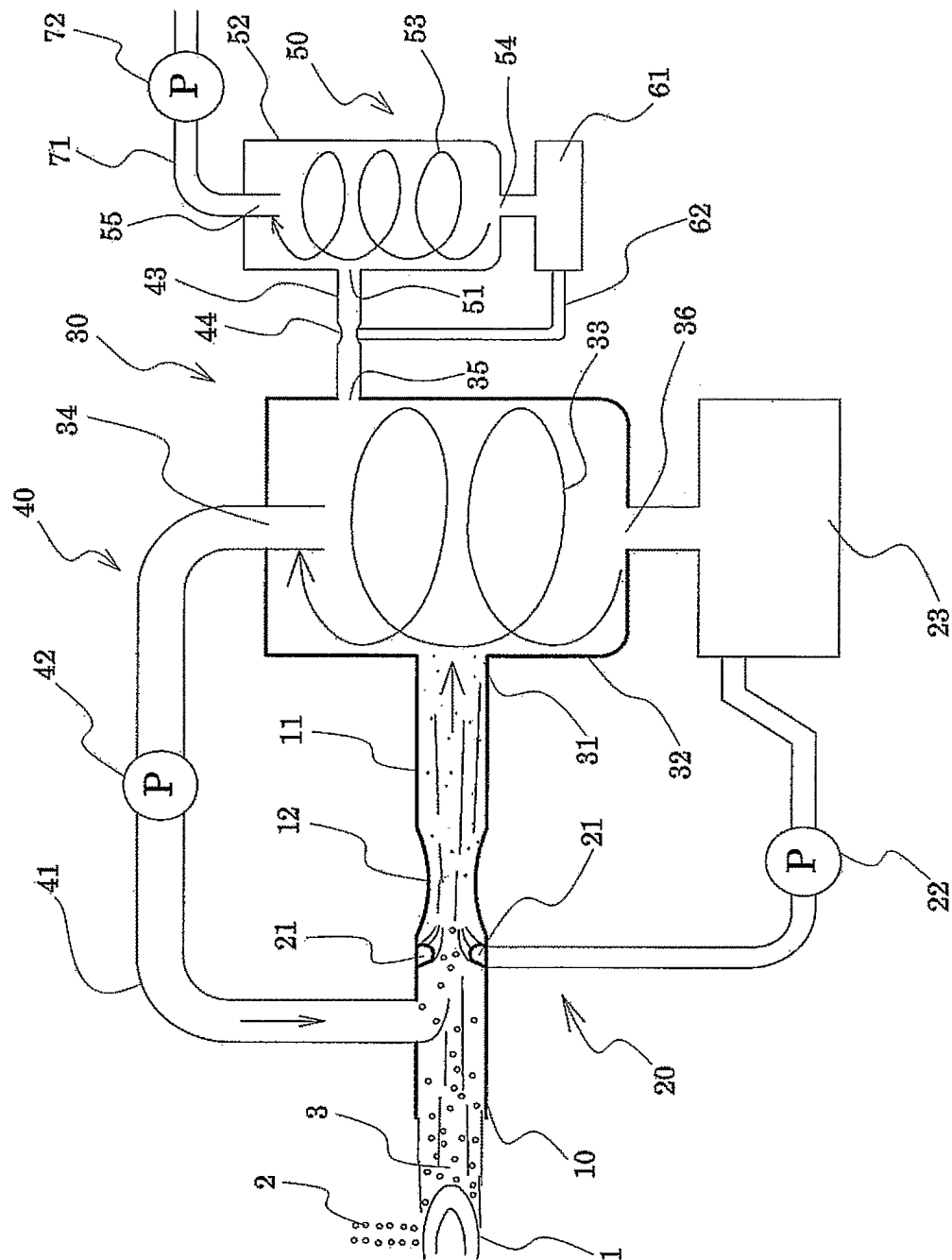
【図 6】 本発明の比較例 3 の I T O 粉末の X 線回折の結果を示す図である。

## 【符号の説明】

【 0 0 7 8 】

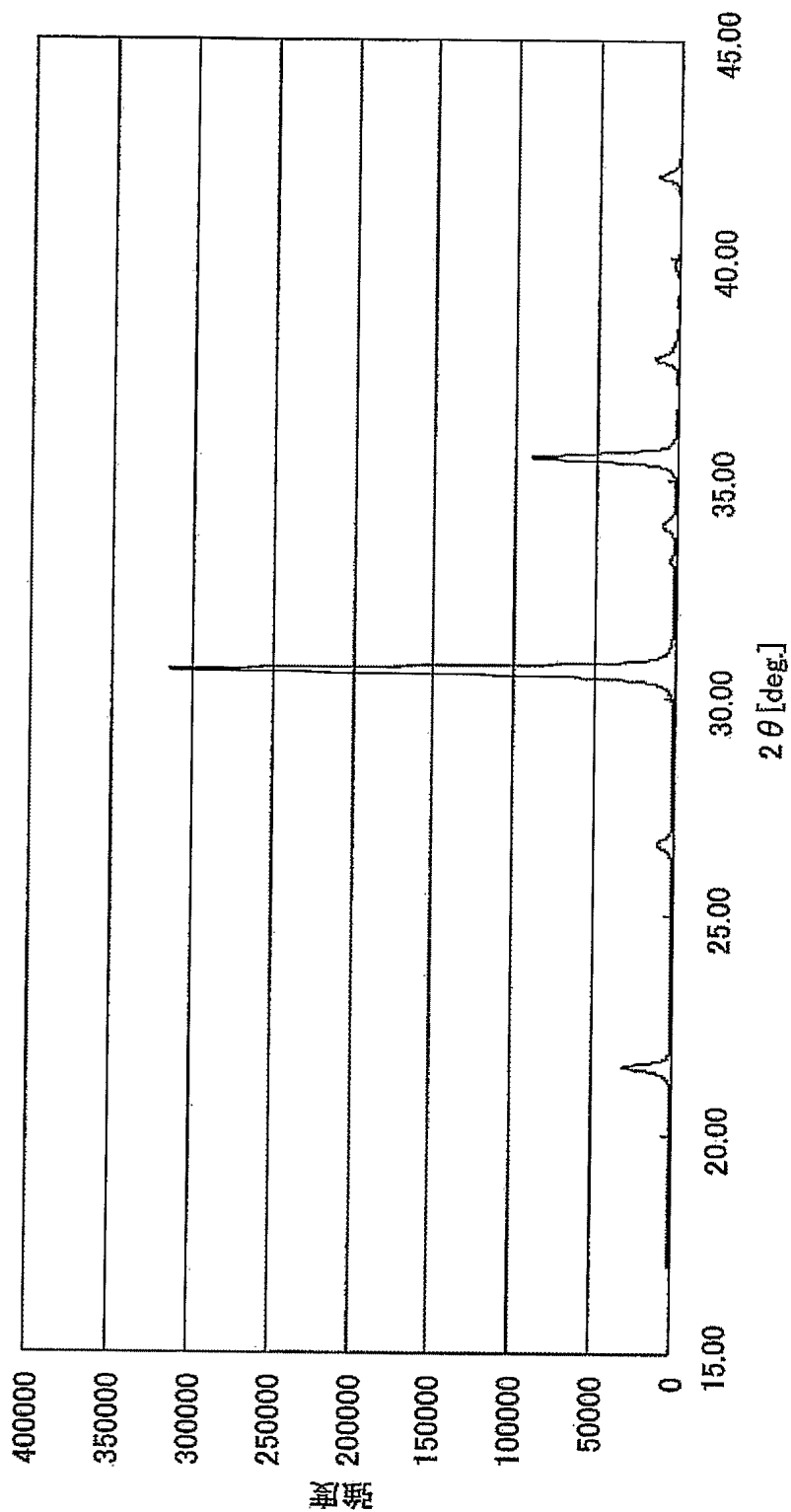
- 1 火炎
- 1 0 導入口
- 1 1 導入管
- 2 0 流体噴射手段
- 2 1 噴射ノズル
- 2 2 ポンプ
- 2 3 流体タンク
- 3 0, 5 0 サイクロン
- 3 2, 5 2 サイクロン本体
- 3 3, 5 3 渦流
- 4 0 循環手段
- 4 1 循環パイプ
- 4 2 プロア
- 4 3 排気パイプ
- 4 4 ベンチュリー部
- 6 1 流体タンク
- 6 2 水循環パイプ
- 7 1 排気パイプ
- 7 2 第 2 のプロア

【書類名】 図面  
【図 1】



【図 2】

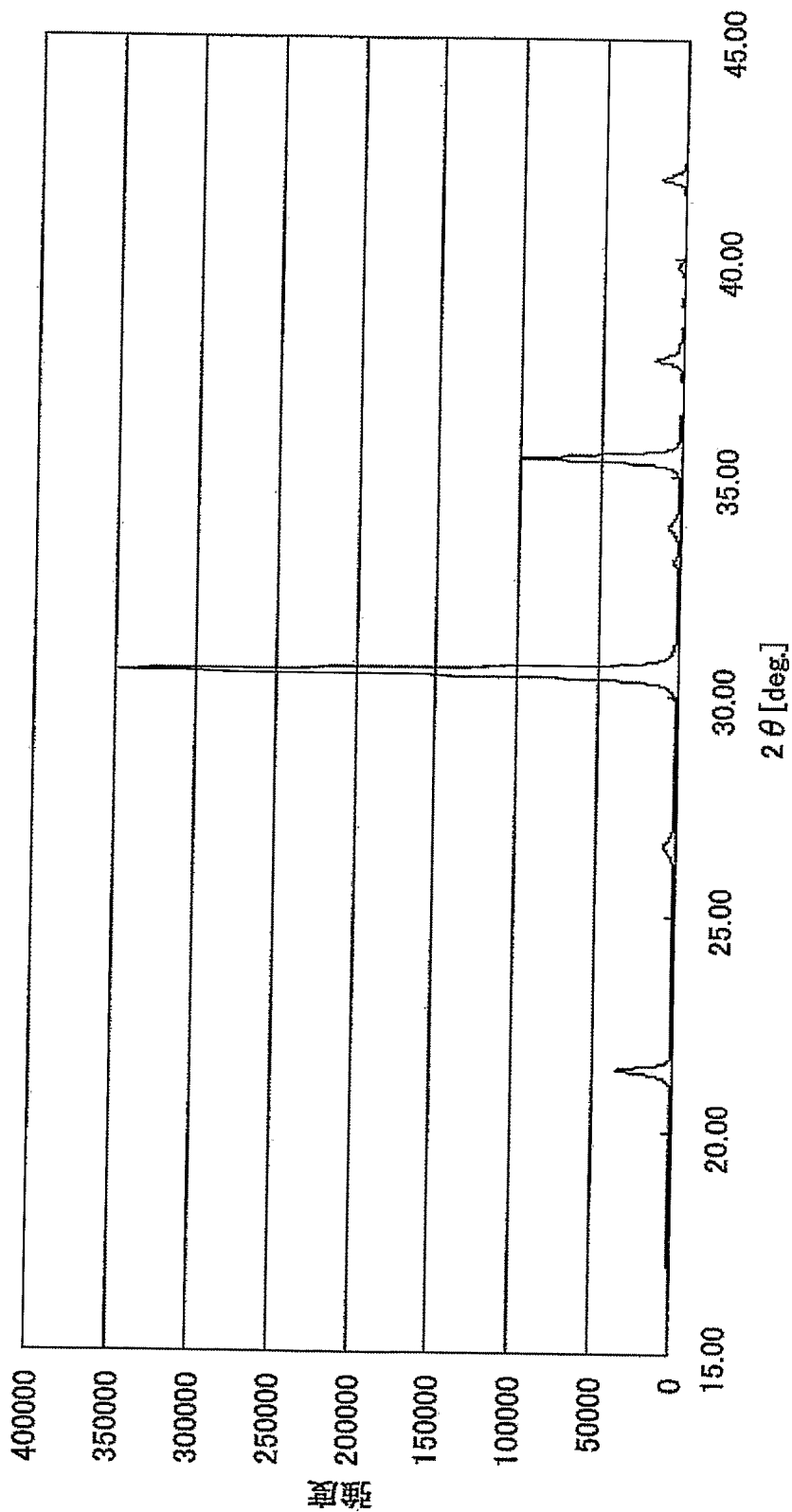
実施例 1





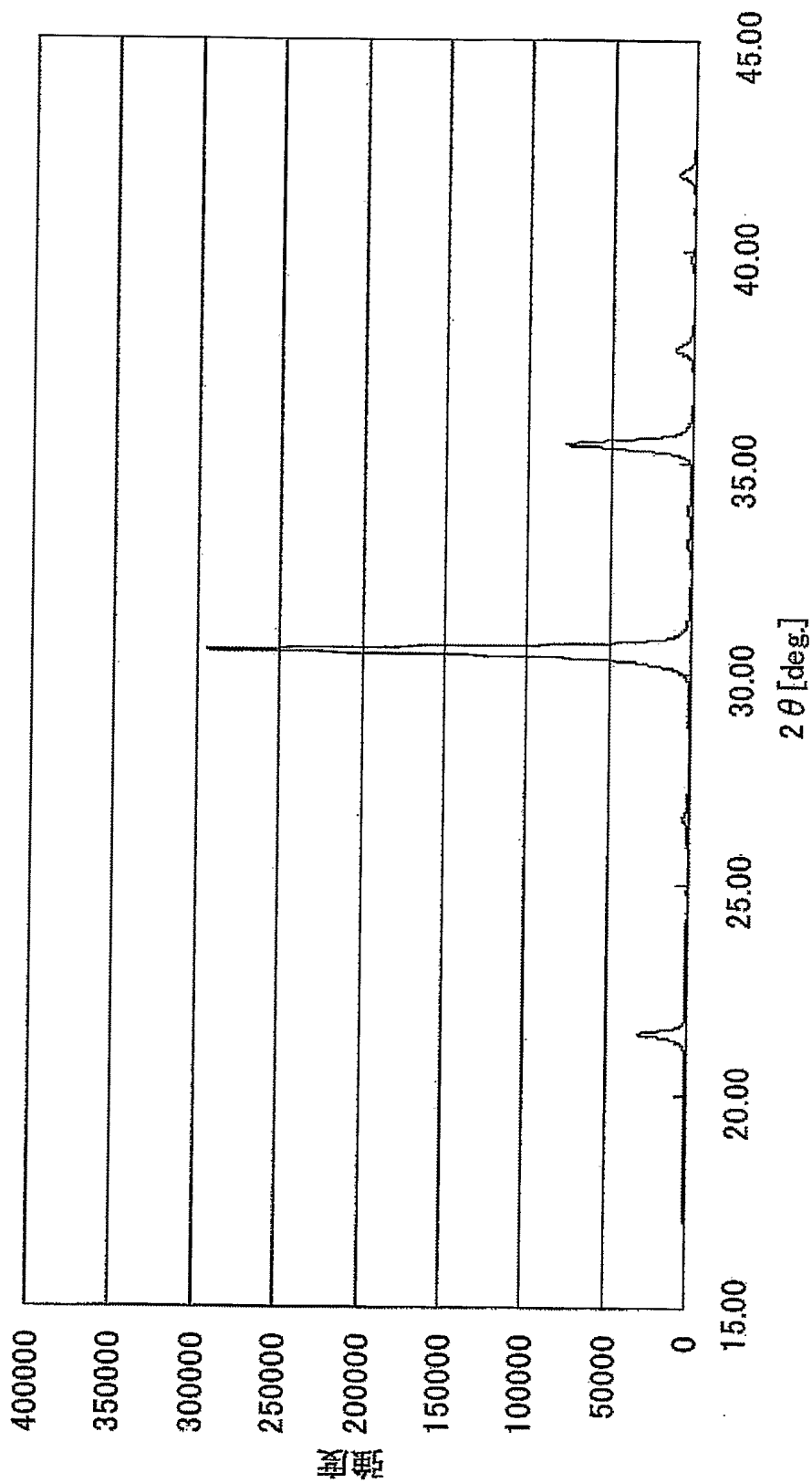
【図 3】

実施例2



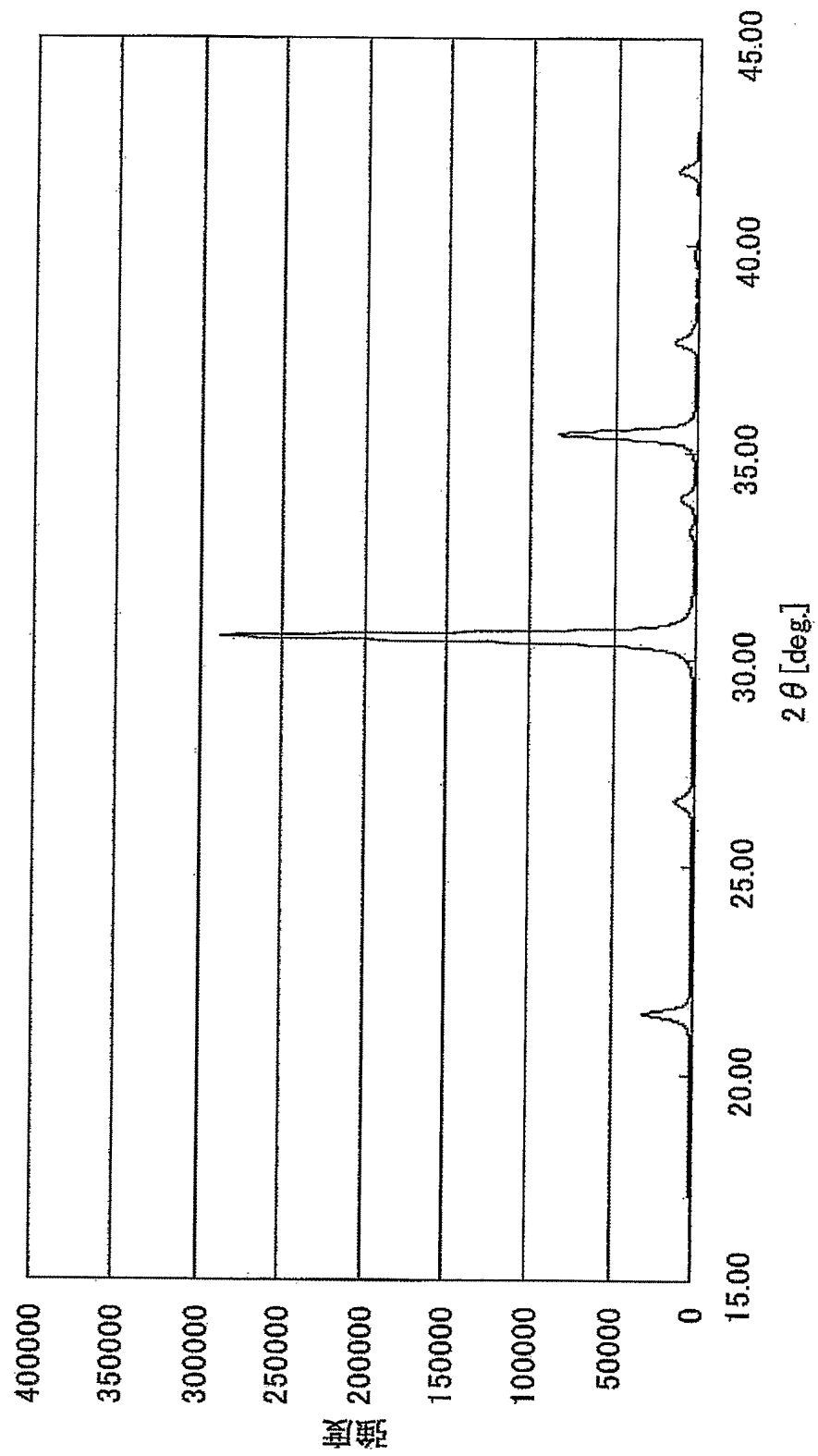
【図 4】

比較例 1 (標準)



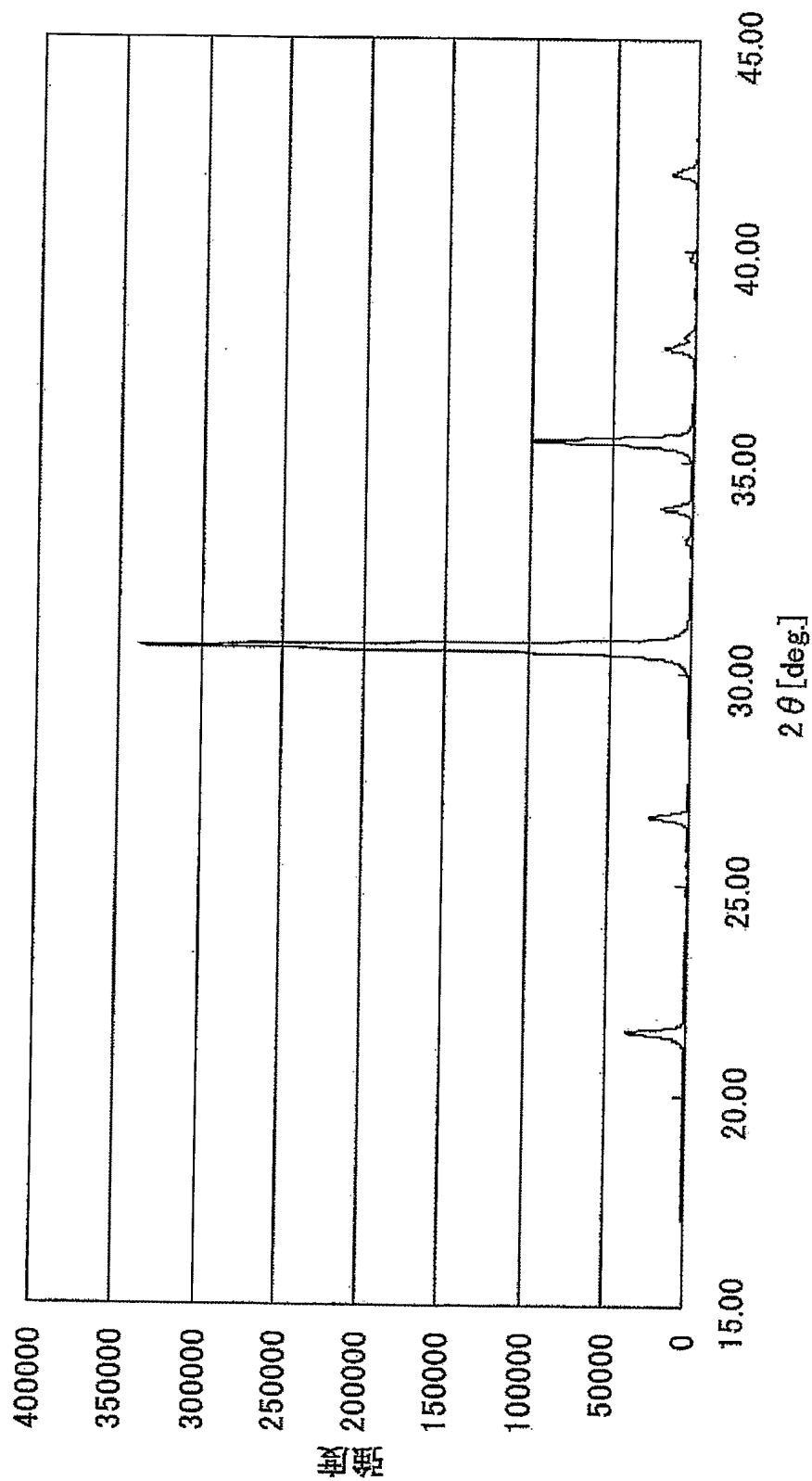
【図 5】

比較例 2



【図 6】

比較例 3



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 酸化物微粒子等の微粒子をより簡便な装置で且つ低コストで製造でき、ITO 粉末の製造に好適な微粒子の製造方法及び製造装置を提供する。

【解決手段】 微粒子を製造する方法において、原料を液流、液滴又は粉末として、熱源中に供給し、生成物を霧状の液状流体により微粒子として捕獲し、気液分離により前記微粒子をスラリーとして回収する。

【選択図】 なし

認定・付加情報

|         |                          |
|---------|--------------------------|
| 特許出願の番号 | 特願 2 0 0 3 - 4 3 1 5 8 6 |
| 受付番号    | 5 0 3 0 2 1 3 9 1 1 8    |
| 書類名     | 特許願                      |
| 担当官     | 第五担当上席 0 0 9 4           |
| 作成日     | 平成 1 5 年 1 2 月 2 6 日     |

<認定情報・付加情報>

【提出日】 平成15年12月25日

特願 2 0 0 3 - 4 3 1 5 8 6

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[ 0 0 0 0 0 6 1 8 3 ]

1. 変更年月日

1 9 9 9 年 1 月 1 2 日

[変更理由]

住所変更

住 所

東京都品川区大崎 1 丁目 1 1 番 1 号

氏 名

三井金属鉱業株式会社